

令和元年6月19日現在

機関番号：15501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17514

研究課題名(和文)ヘテロ中間層を用いた非極性面発光デバイスの偏光特性制御と高性能化

研究課題名(英文) High performance and controlling optical polarization for unpolar optical devices using hetero middle layer

研究代表者

岡田 成仁 (Okada, Narihito)

山口大学・大学院創成科学研究科・准教授

研究者番号：70510684

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：完全緩和したInGa<sub>N</sub>を用いた場合はその構造に関わらず偏向特性に影響がないことが明らかとなり、偏向特性の制御にはInGa<sub>N</sub>下地層の最適化およびMQWの最適化が必要であることが明らかとなった。InGa<sub>N</sub>多段ヘテロ中間層を用いた場合はどの組成にもよらず、高品質のInGa<sub>N</sub>を下地のGa<sub>N</sub>層の品質を受け継いだ形で作製できることが明らかとなり、高品質InGa<sub>N</sub>膜作製技術を確立することができた。高品質非極性面Ga<sub>N</sub>成長には高品質Ga<sub>N</sub>を用いることにより達成でき、積層欠陥はテンプレートの品質と同レベル、転位密度は膜厚とともに低減できることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非極性面を用いたGa<sub>N</sub>系LEDは多くの可能性を秘めている。電界成分を持つ光の割合を大きくする、つまり偏光度を大きくさせることで、例えば液晶用LEDとして光の活用効率を大幅に改善することが可能となる。つまり、『偏光特性を制御した発光デバイス』は窒化物半導体の新機能デバイスとして期待されている。しかしながら、発光層の品質低下によりデバイス性能を引き出しきれない問題があった。本研究課題により非極性面LEDの発光効率を改善する手法を見出し、さらに高品質な非極性面Ga<sub>N</sub>基板の作製に成功した。これら結果により社会により省エネや特殊用途に用いるこのできるLEDの普及が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The optical polarization is not change under the same In content of the top perfectly relaxed InGa<sub>N</sub> underlying layer. Thus, to control optical polarization, optimization of In content of InGa<sub>N</sub> underlying layer and MQW should be required. When the multi-middle hetero layer is used, high quality InGa<sub>N</sub> can be achieved according to the quality of the Ga<sub>N</sub> underlying layer. We succeeded in the fabrication of unipolar Ga<sub>N</sub> substrate with very few stacking fault and dislocation density using high-quality Ga<sub>N</sub> template with few SFs.

研究分野：半導体工学

キーワード：非極性面Ga<sub>N</sub> 偏光特性 Ga<sub>N</sub>基板 InGa<sub>N</sub>多段ヘテロ中間層

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

一般的な極性面（c 面）窒化物半導体を用いた発光ダイオード（LED）は 2014 年のノーベル物理学賞の功績からも分かる通り成熟した分野となってきた。当該分野に要求されることは従来に無い特殊用途で利用されるデバイスである。この観点において、特定の非極性面（c 面以外）は、条件により A バンド B バンド（エネルギーギャップ： $\Delta E$ ）がスイッチングする偏光特性を示す窒化物半導体でも興味深い材料系である【M. Ueda et al. APL 89, 211907 (2006)】。図 1 に示すような一方向の電界成分を持つ光の割合を大きくする、つまり偏光度を大きくさせることで、例えば液晶用 LED として光の活用効率の大幅な改善が可能となる。以上のように、『偏光特性を制御した発光デバイス』は窒化物半導体の新機能デバイスとして期待されている。

しかしながら、非極性面は数多くの問題を抱えている。非極性面を用いた発光デバイスは、非極性面の魅力的な物性により世界中の機関から数多く報告されているが、ヘテロ成長により引き起こされる欠陥導入を引き起こしやすい問題を抱えている【Z. H. Wu et al., Appl. Phys. Lett. 98, 051902 (2011)】。また、異種基板上の非極性面 GaN の欠陥密度は c 面 GaN の品質より劣る【T.J. Baker et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45, L154 (2006)】。つまり、非極性面を用いた発光デバイスの性能を十分に引き出すためには、高品質非極性面 GaN の利用、ヘテロ成長における欠陥導入の抑制が必須であり、本研究では非極性面を用いた発光デバイスの性能を十分に引き出すことのできる InGaN ヘテロ中間層を導入する。さらに図 2 は InGaN 下地層を用いた場合の InGaN 下地の In 組成比と発光層の In 組成比の偏光特性に及ぼす  $\Delta E$  の理論計算結果を示している。このように InGaN の下地層は変更特性を制御するうえでも重要な役割を果たす。

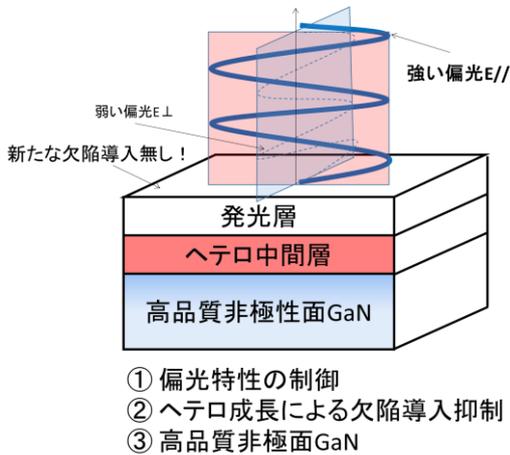


図 1 ヘテロ中間層を用いた偏光性制御した発光デバイスの概念図

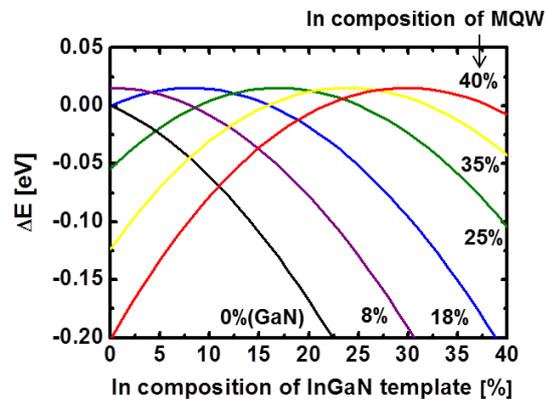


図 2 偏光度を示す  $\Delta E$  の InGaN ヘテロ中間層の組成依存性の理論結果  
InGaN ヘテロ中間層の組成を変化ことにより偏光度が制御可能

### 2. 研究の目的

『InGaN ヘテロ中間層』を用いることで発光層にかかる歪を変化させ、非極性面発光デバイスにおいて特定の偏光特性が発現することを実証した。しかしながら、偏光特性を制御するといった課題が残っており、デバイスの高性能化の妨げとなっている。本研究課題ではヘテロ中間層の膜厚・組成・結晶材料などをパラメータに、偏光特性を意図的に変化させることで『非極性面発光デバイスの偏光特性制御と高性能化』を達成する。結果的に、広く普及した窒化物半導体発光デバイス分野に特異な偏光特性を有した付加価値の高い高性能発光ダイオードやレーザーダイオードを提供する。具体的には以下の 3 点を明らかにすることを目的とした。

- (1) ヘテロ中間層上発光デバイスの偏光特性解明
- (2) ヘテロ中間層の欠陥発生臨界膜厚・組成の同定、および構造最適化
- (3) 高品質非極性面 GaN 成長における欠陥挙動メカニズム解明

### 3. 研究の方法

①発光デバイスの基板となる高品質非極性面 GaN 基板の作製を行う。並行して、欠陥挙動メカニズムの解明を行う。その後、②歪制御及び欠陥低減効果のある InGaN ヘテロ中間層の成長と臨界組成・臨界膜厚の定量的評価を行う。また、欠陥の無いヘテロ中間層の構造・成長条件を確立する。そして、③非極性面 GaN 基板上にヘテロ中間層を有した発光層を作製し、その偏光特性が制御できていることを実証する。

- ① 高品質非極性面 GaN 成長と評価と欠陥低減メカニズム解明

発光デバイス作製には非極性面 GaN 基板が必要であるため、非極性面の作製、及び更なる高品質化に取り組む。有機金属気相成長法 (MOVPE) を用いて加工基板側壁からの選択成長からの非極性面 GaN の成長技術を用いることにより、GaN テンプレートを作製する。その後、HPVE 法を用いて最適な成長条件により厚膜成長させた非極性面 GaN 基板を作製する。高品質化には図 3 に示した転位の低減し易い面方位の選定に加え、積層欠陥低減が重要である。積層欠陥の発生の一部の要因は内部歪の増大であることを解明しており、この結果より考案した基板の歪低減手法【特許出願済み：特願 2015-056211】を用いて、積層欠陥の抑制を図る。作製した非極性面 GaN 基板の結晶品質を、X 線回折 (XRD)、透過型電子顕微鏡 (TEM)、フォトルミネッセンス (PL) によって評価する。最終的に研磨加工を行い、デバイス作製用の基板とする。結晶品質はバルク c 面 GaN 基板からの切り出した小片非極性面 GaN 基板の市販レベル【J. Nishinaka et al., Appl. Phys. Lett., 106, 082105 (2015)】である転位密度 106/cm<sup>2</sup> 台、積層欠陥の無い基板を目指す。また、走査型電子顕微鏡 (SEM)、TEM、蛍光顕微鏡などを用いて成長モード・欠陥挙動の観察を行い、転位・積層欠陥の低減メカニズムの解明を並行して行う。

② ③ ヘテロ中間層の成長・評価 (AlGaIn, InGaIn, AlInGaIn の導入と評価) 及び発光層を作製とその評価

高品質化された非極性面 GaN 基板上に、i) 発光層の歪を制御する、ii) ヘテロ成長において欠陥抑制するヘテロ中間層 (InGaIn) の成長の MOVPE 成長を行う。結晶の組成を推定できる熱力学解析に基づき、InGaIn のそれぞれの組成・膜厚を系統的に変化させたヘテロ中間層を成長し、XRD、AFM、TEM を用い、欠陥密度・結晶品質を定量的に評価する。非極性面 GaN 基板と InGaIn、ヘテロ中間層の欠陥密度を比較し、膜厚・組成に対する臨界膜厚・臨界組成 (欠陥導入抑制効果) を同定する。特に大きな組成差のヘテロ中間層が欠陥導入の無いことが重要であるが、実験が計画通りいかない場合の工夫として図 3 に示すような順次組成が変化していく多層ヘテロ中間層の構造提案する。臨界膜厚は組成の差によって決まるため、段階的に組成を変化させることにより、貫通転位の発生を防げると想定した。非極性面のヘテロ成長における緩和メカニズムの理論計算に基づき【A. E. Romanov et al., J. Appl. Phys. 100, 023522 (2006)】、臨界膜厚・臨界組成、最適な多層ヘテロ中間層の構造を予測し、計画的に実験を進める。最終的に発光層を作製し、偏光特性・発光効率の評価を行う。

組成差を徐々に変更することで貫通転位の発生を防ぐ

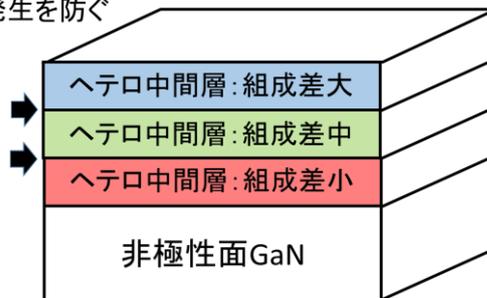


図 3 多層ヘテロ中間層モデル

4. 研究成果

はじめに、多層ヘテロ成長の効果を調べるために r 面サファイア基板上に {11-22}GaN を成長させ、その後単層の InGaIn と In 組成を順次変化させた多層 InGaIn 層を成長させた。そのサンプルモデルを図 4 に示す。最終的な InGaIn の In 組成は 15% とどちらも同様となるように、同膜厚で成長させた。このとき全て InGaIn は完全緩和していることが X 線の逆格子空間マッピングより明らかとなった。多層 InGaIn の In 組成は 850, 800, 750°C と変かさせながら成長し 4, 11, 15% の三段階で変化させた。この試料を SEM により表面状態を調べた結果、どちらも InGaIn の c 軸方向に沿った Surface undulation が観測されたが、比較的平坦に成長していることが分かった。当初の目的どおり、単層と多層の InGaIn の結晶品質の差を TEM によって観察した。図 5 は単層と多層の InGaIn の TEM 像である。視覚化しやすい様に欠陥と思われる箇所は赤線で示した。この結果より、単層の InGaIn を成長させた場合には急な緩和により大量のミスフィット転位が導入していることが分かる。一方、多層で InGaIn を成長させた場合、GaN に存在している欠陥をそのまま引き継いだ欠陥が大部分であり、ミスフィット起因と思われる欠陥を激減させることに成功した。これらサンプルの上に InGaIn/GaN の MQW を作製し、InGaIn を単層、多層で成長させた場合と発光特性について調査した。InGaIn の効果を調べるために InGaIn を挿入しない GaN だけのサンプルも作製し同様の評価を行っている。各 MQW の CL スペクトルを図 6 に示す。MQW は全て同条件で作成されているにもかかわらず、GaN 上の MQW の発光ピーク波長は 450 nm、InGaIn 単層上の MQW は 480 nm、多層 InGaIn 上 MQW は 500 nm という結果になった。多層、単層上 MQW の違いは現

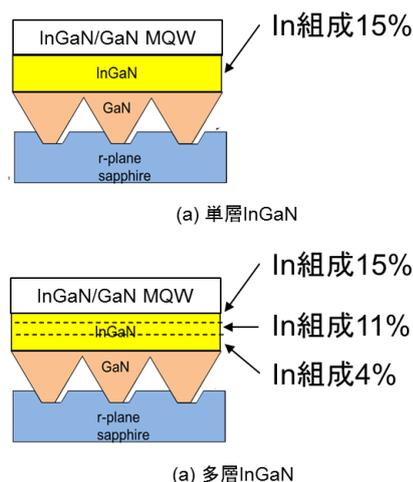


図 4 サファイア加工基板上非極性面 GaN 上(a)単層、(b)多層 InGaIn および MQW の成長モデル

在検討中であるが、どちらの MQW も GaN 上に成長された MQW よりも長波長側で発光することが明らかとなり、InGaN 下地層の影響を反映した MQW の In 組成引き込み効果が増大した結果であると考えられる。さらに発光強度について比較すると GaN を下地にした場合と比較し単層 InGaN は約 10 倍大きく、多層 InGaN は単層 InGaN と比較し約 9 倍大きいことが明らかとなった。InGaN を用いた場合、これまでの実験と InGaN 層を用いた場合は MQW の歪が緩和した結果であると考えられ、多層 InGaN を用いた場合は InGaN の品質が向上した結果であると考えられる。総じて、高品質の InGaN 膜を得るためには求めたい In 組成の大きさに関わらず、段階的に In 組成を変化させる手法を用いなければいかなる In 組成の InGaN も高品質で作製することができることが明らかとなった。つまり当初の目的 (2) を達成できたといえる。一方で、中間層として挙げたほかの材料系、AlGaIn は今後の課題である。

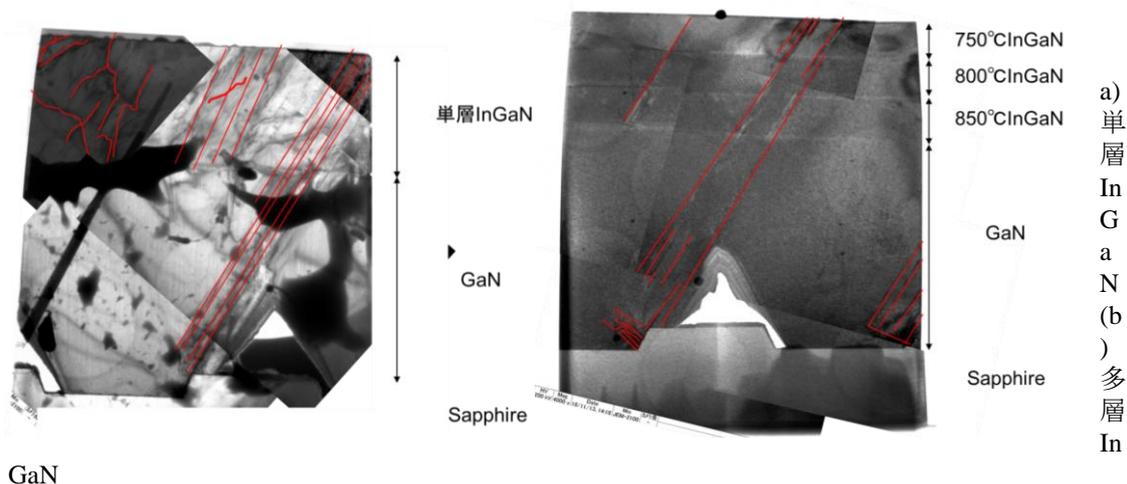


図 5 サファイア加工基板上非極性面 GaN 上(a)単層、(b)多層 InGaN の断面 TEM 像

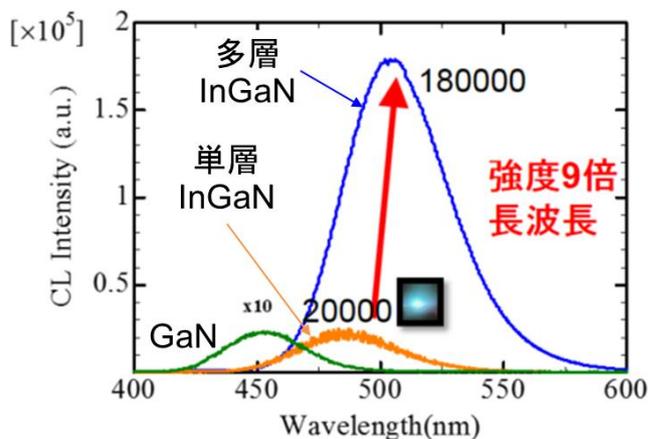
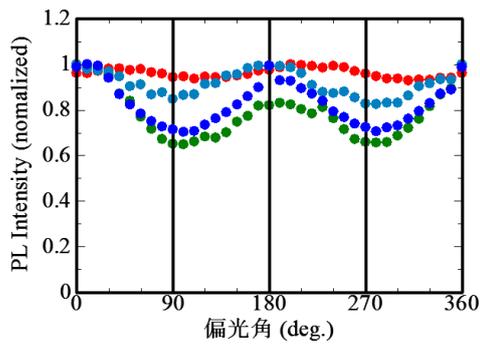
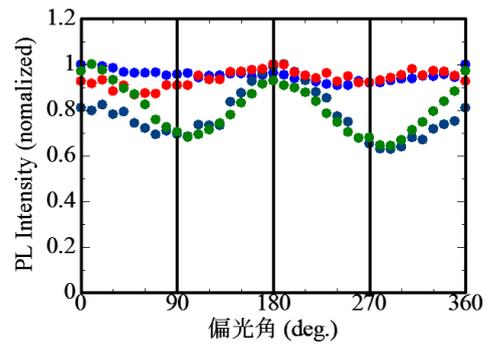


図 6 (a)単層、(b)多層 InGaN および GaN 上 MQW のスペクトル

以上の結果より、多層 InGaN を用いて MQW の発光強度の改善に成功した。引き続き研究目的である偏向特性を調査した。偏向特性は MQW の発光波長赤、緑、青、紫色について検討した。図 7 は単層・多層 InGaN 上 MQW の各波長での偏向特性を示したものである。図中のデータの色と発光波長は対応関係にある。当初の考えでは下地層 InGaN の違いで偏向特性に変化が出ることを予想したが、最上層に用いる InGaN が完全緩和し、かつ同 In 組成であればその上の MQW の偏向特性は大きく変化しない結果となった。この結果は研究目的(1)に対するものであり、偏向特性を変更するためには様々な In 組成の完全緩和した InGaN 下地層が必要であることが分かった。



(a) 単層 InGaN



(b) 多層 InGaN

図7 (a)単層、(b)多層 InGaN 上 MQW の偏向特性

一方で、本科研費を利用して、サファイア加工基板上に非極性面 GaN の高品質化を達成している Yale 大学 J. Han 教授との共同研究を開始した。Yale 大学は山口大学が開発したサファイア加工基板を用いた非極性面の結晶成長に新たな結晶成長メカニズムを取り入れた。それはサファイア加工基板上非極性面 GaN の問題点であった積層欠陥を劇的に減らす手法である。その成長機構のイメージを図8に示す。一般的に GaN は-c 面が現れる成長をすると積層欠陥が大量に挿入されることは良く知られた事実である。言い換えれば、-c 面がでなければ積層欠陥は導入されないことになる。Yale 大学のグループはこの問題を解決すべく {10-1-k}、{10-1-n} 面を-c 面の代わりに成長する条件を確立し、サファイア加工基板を用いた非極性面 GaN の積層欠陥が極限に少ないテンプレートに成功した。彼らはこの技術を基に Saphlux というベンチャー会社を設立している。山口大学はこの積層欠陥の少ない非極性 {20-21}GaN の上にハイドライド気相成長 (HVPE) 法を用いた高品質非極性面 GaN 基板の作製に取り組んだ。

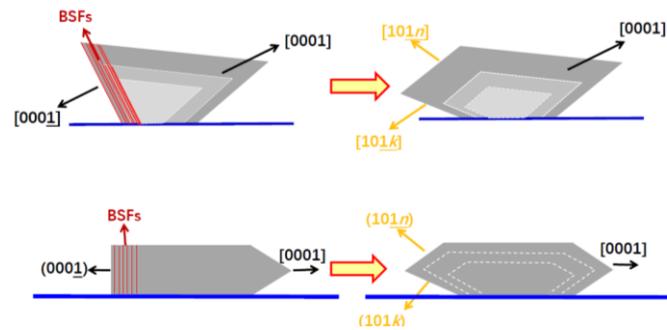


図8 非極性面 GaN の積層欠陥の低減手法

積層欠陥の少ない高品質な半極性 {20-21} 面 GaN テンプレート (Yale 大学提供) 上に HVPE 法によって GaN の成長を行った。c 軸方向と等価な <-1014> に平行にストライプ状 SiO<sub>2</sub> マスクを 4 μm 幅、6 μm 周期で成膜した基板とマスクを成膜していない基板に HVPE 法を用いて 120 min 成長させた。図9は成長後の断面低温 CL 像である。積層欠陥が存在しており、積層欠陥密度は 1×10<sup>3</sup> cm<sup>-1</sup> であった。GaN テンプレートの積層欠陥密度も 1×10<sup>3</sup> cm<sup>-1</sup> 程度であり、作製した GaN 基板の積層欠陥密度はテンプレートの積層欠陥密度を引き継ぐことが明らかとなった。さらに厚膜化による GaN 転位密度の低減を試みた。成長膜厚を 50~720 μm と変化させて GaN テンプレートを HVPE 成長させた。転位密度は CL のダークスポットをカウントすることにより求めた。図10は膜厚と転位密度の関係を示したものである。転位密度は膜厚増加に伴い減

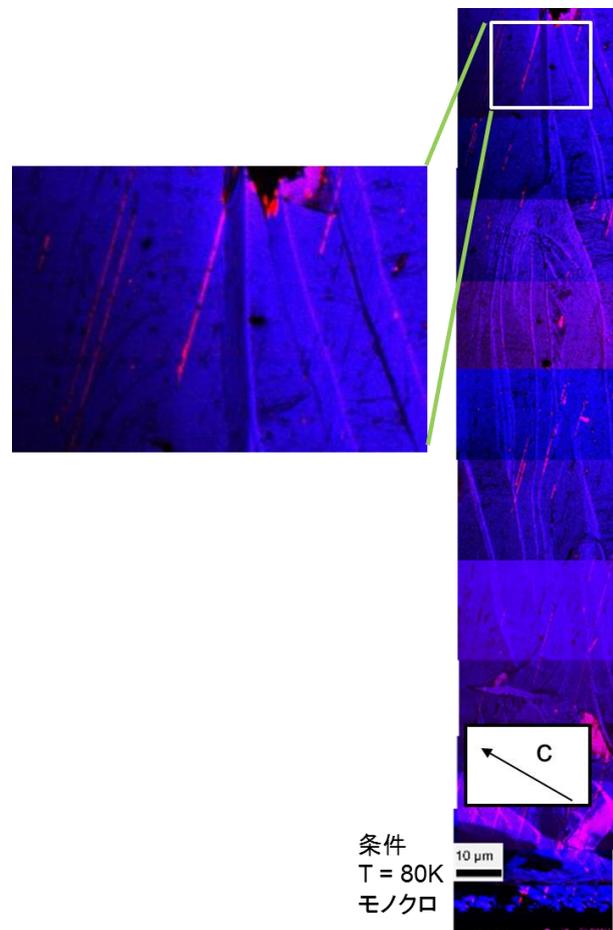


図9 HVPE 成長後の断面低温 CL 像

少し  $5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$  程度まで低減できることが明らかとなった。本実験の結果は目標(3)に掲げた、高品質非極性面 GaN 成長における欠陥挙動メカニズム解明に関わるものであり、積層欠陥密度はテンプレートに依存し、HVPE 成長により転位密度を低減できることが明らかとなった。

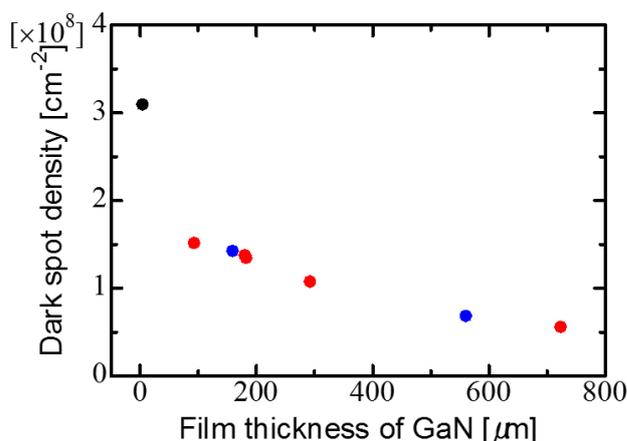


図 10 非極性面 GaN の HVPE 成長による転位密度の膜厚依存性

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 3 件)

1. N. Okada, Y. Inomata, H. Ikeuchi, S. Fujimoto, H. Itakura, S. Nakashima, R. Kawamura, and K. Tadatomo “Characterization of high-quality relaxed flat InGaN template fabricated by combination of epitaxial lateral overgrowth and chemical mechanical polishing” Journal of Crystal Growth 512, 147 (2019) (査読あり)

〔学会発表〕 (計 5 件)

1. Yuki Inomata, Hideyuki Itakura, Satoru Fujimoto, Narihito Okada, and Kazuyuki Tadatomo “Fabrication and evaluation of multiple-quantum wells on high-quality relaxed InGaN template fabricated by combination of ELO and CMP”, 19th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy, 7C-1.5, 2018.6.3-8, Nara Kasugano International Forum, Nara, Japan (Oral)
2. 猪股 祐貴、河村 濤、中島 慎太郎、板倉 秀之、藤本 怜、池内 裕紀、岡田 成仁、只友 一行「緩和した厚膜 InGaN の成長とその評価 3」2018 年 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-146-3, 2018.9.18-21, 名古屋国際会議場, 愛知県

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://device.eee.yamaguchi-u.ac.jp/>

## 6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：只友 一行

ローマ字氏名：Kazuyuki Tadatomo

研究協力者指名：

ローマ字氏名：Jung Han